

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-319788

(43)Date of publication of application : 16.11.2001

(51)Int.Cl.

H05B 33/22  
C09K 11/06  
H05B 33/14

(21)Application number : 2000-138670

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 11.05.2000

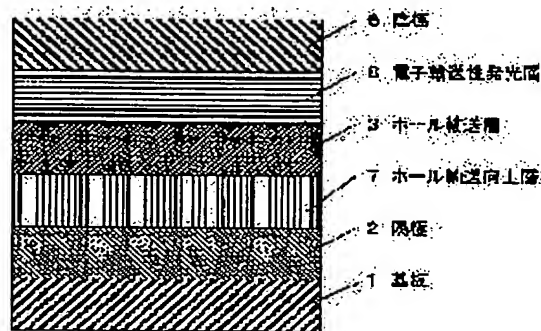
(72)Inventor : TSUCHIYA SOJI  
MIYAMOTO AKITO

## (54) ELECTRIC FIELD LUMINESCENT LIGHT

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an electric field luminescent light in which luminous efficiency is made higher and a stable light emission for a long time is obtained and a blue luminescence with a high luminance and a superior chromaticity is possible.

**SOLUTION:** By forming an electric charge transport enhancing layer is formed between a positive electrode 2 and a hole transport layer 3 or between a luminous layer 8 and a negative electrode 6, or by containing the electric charge transport enhancing material in the hole transport layer 3 or in the luminous layer 8, the electric field luminescent light is provided in which an improvement of luminous efficiency or an improvement of stability and life are aimed at.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-319788

(P 2 0 0 1 - 3 1 9 7 8 8 A)

(43) 公開日 平成13年11月16日 (2001. 11. 16)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード (参考)
H05B 33/22		H05B 33/22	D 3K007
			B
C09K 11/06	690	C09K 11/06	690
H05B 33/14		H05B 33/14	A

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全9頁)

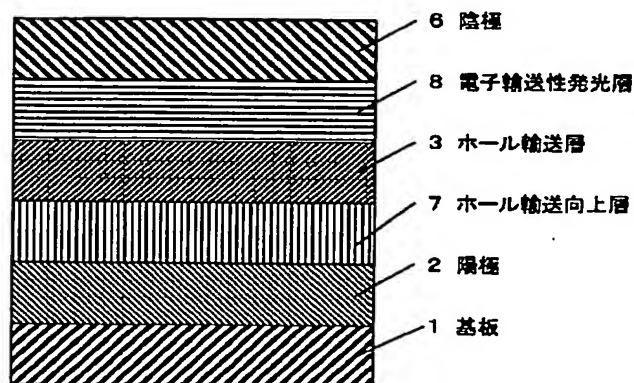
(21) 出願番号	特願2000-138670 (P 2000-138670)	(71) 出願人	000005821 松下電器産業株式会社 大阪府門真市大字門真1006番地
(22) 出願日	平成12年5月11日 (2000. 5. 11)	(72) 発明者	土屋 宗次 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器 産業株式会社内
		(72) 発明者	宮本 明人 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器 産業株式会社内
		(74) 代理人	100097445 弁理士 岩橋 文雄 (外2名)
		Fターム (参考)	3K007 AB00 AB02 AB03 AB13 AB15 CA01 CB01 CB03 DA00 DB03 EB00 FA01

(54) 【発明の名称】 電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】 電界発光素子においてより発光効率を高めると共に、長時間安定発光し、高輝度で色度良好な青色発光が可能な電界発光素子を提供することである。

【解決手段】 陽極2とホール輸送層3又は発光層8と陰極6の間に電荷輸送向上層を形成するか、あるいは電荷輸送向上材をホール輸送層3、又は発光層8に含有することにより、発光効率の向上、及び安定性、寿命の向上が図られた電界発光素子が得られる。



BEST AVAILABLE COPY

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられたホール輸送層及び発光層と、前記陽極と前記ホール輸送層の間に電荷輸送能を向上させる電荷輸送向上層とを有する電界発光素子。

【請求項 2】 陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた発光層と、前記陰極と前記発光層の間に電荷輸送能を向上させる電荷輸送向上層とを有する電界発光素子。

【請求項 3】 電荷輸送向上層がホール輸送能を向上させるホール輸送向上層である請求項 1 記載の電界発光素子。

【請求項 4】 電荷輸送向上層が電子輸送能を向上させる電子輸送向上層である請求項 2 記載の電界発光素子。

【請求項 5】 ホール輸送層内に電荷輸送を向上させる電荷輸送向上材料を含有することを特徴とする請求項 1 又は 3 記載の電界発光素子。

【請求項 6】 発光層内に電荷輸送を向上させる電荷輸送向上材料を含有することを特徴とする請求項 2 又は 4 記載の電界発光素子。

【請求項 7】 電荷輸送向上層が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項 1 又は 2 記載の電界発光素子。

【請求項 8】 ホール輸送向上層が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項 3 記載の電界発光素子。

【請求項 9】 電子輸送向上層が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項 4 記載の電界発光素子。

【請求項 10】 電荷輸送向上材料が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項 5 又は 6 記載の電界発光素子。

【請求項 11】 光導電体がフタロシアニン化合物、ペリレン化合物もしくはアゾ化合物、又はそれらの混合物を有することを特徴する請求項 7 ないし 10 のいずれか記載の電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電界発光素子に関し、例えば、自発光の平面型ディスプレイに応用できるものであり、特に有機薄膜を発光層とホール輸送層に用いる電界発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】電子機器、装置の小型化に伴い、軽量薄型で高効率のフラットパネルディスプレイへの要望が大きくなっている。今日、液晶ディスプレイは、様々な製品に用いられており、ラップトップ型情報処理機器はもちろんのこと、小型テレビや時計、電卓を初めとして、日常製品に多く用いられている。

【0003】現在、最も多く使用されているフラットパ

ネルディスプレイはアクティブマトリクス駆動方式の液晶ディスプレイであるが、視野角が狭い点、自発光でないためバックライトを使用する場合にはこのバックライトの消費電力が大きい点、今後さらに高精細度化かつ高速化のビデオ信号に対して十分な応答性を有さない点、そして、TFT（薄膜トランジスタ）駆動回路を用いるため、画素欠陥により画面サイズの大型化が困難である点等の課題がある。TFT駆動回路を用いることは、コストの点から考えても不利となっている。液晶ディスプレイにおいて、別の駆動方式である、単純マトリクス方式は、低コストである上に画面サイズの大型化が比較的容易であるが、動画を扱うに十分な応答速度を有していないという課題がある。

【0004】液晶ディスプレイに替わるフラットパネルディスプレイとして、発光ダイオード、プラズマ表示素子、無機電界発光素子、有機電界発光素子等が研究されている。発光ダイオードは大面積の単一基板上への発光ダイオードマトリクスの製造は困難であり、ブラウン管に置き替わる低コストのディスプレイとなるには至っていない。プラズマ表示素子は低圧ガス中でのプラズマ発光を表示に用いたもので、大型化、大容量化に適しているが、薄型化、コストの面での課題を有する。また、駆動に高電圧の交流バイアスを必要とし、携帯用デバイスには適していない。

【0005】無機電界発光素子は、緑色発光ディスプレイ等が商品化されたが、プラズマ表示素子と同様に、交流バイアス駆動であり、駆動には数百V必要であり、実用性に欠けている。しかし、技術の発展により、カラーディスプレイ表示に必要なR（赤）、G（緑）、B（青）の三原色の発光に成功はしているが、無機材料のために、分子設計などによる発光波長等の制御は困難であり、フルカラー化は困難であると思われる。

【0006】一方、有機化合物による電界発光素子は1987年にイーストマン・コダック社が低電圧駆動、高輝度発光が可能なアモルファス発光層を有する積層構造の有機薄膜電界発光素子を発表して以来、各方面で、R、G、Bの三原色の発光、安定性、輝度上昇、積層構造、作製方法等の研究開発が盛んに行われている。これは、自発光で応答速度が大きく、視野角依存性がない長所を有する。

【0007】有機発光材料を用いた有機電界発光素子は、透光性の陽極と金属陰極との間に、有機発光材料を含む有機電界発光層を挟み込んだものである。有機電界発光層をホール輸送層と電子輸送層との2層構成とし、陽極および陰極から有機電界発光層に注入されるホールと電子が再結合する際に発光する素子構造を最初にアブライド・フィジックス・レター、51巻、12号、913頁、1987年（Appl. Phys. Lett., 51(12), 913(1987)）において報告した。この素子構造は電子輸送層が発光層を兼ねているものである。

【0008】発光は、発光材料の基底状態と励起状態とのエネルギーギャップに対応した波長帯で起きる。このように有機電界発光層を2層構造としたことで、駆動電圧の大幅な削減、発光効率の向上が図られ、これ以来、フラットパネルディスプレイ等への応用を目指した研究が進められている。高発光効率を得るための発光材料としては、亜鉛錯体やアルミニウム錯体等、種々の金属錯体が現在までに提案されている。

【0009】素子構造についても、その後ホール輸送層、発光層および電子輸送層の3層構造とした例がジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス27巻、2号、L269頁、1988年(Jap. J. of Appl. Phys. 27-2, L269 (1988))に報告された。その素子構造を図#に示す。図#において、透明の基板(例えばガラス基板)1上に、ITO(Indium tin oxide)からなる透明の陽極2、ホール輸送層3、発光層4、電子輸送層5、陰極6を例えば真空蒸着法で順次成膜したものである。陽極2は、ITO(Indium Tin Oxide)や $\text{SnO}_2$ の他に、Sb含有 $\text{SnO}_2$ 、Al含有ZnOあるいはAu薄膜等の透明導電材料からなる。陽極の電気抵抗値は、素子の消費電力や発熱を低減するために、低抵抗であることが望ましい。

【0010】さらに、電子輸送層に発光材料を含ませ、発光層を兼ねる電子輸送層とホール輸送層との2層構造が、ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス65巻、9号、3610頁、1989年(J. of Appl. Phys. 65-9, 3610-3616 (1989))に報告された。これらの報告により、低電圧で高輝度発光の可能性が検証され、有機電界発光素子の研究開発は近年極めて活発におこなわれている。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、有機EL素子の実用化に向けては、発光輝度あるいは耐久性等、解決すべき問題がいくつか残されている。高い発光輝度と、経時安定性に優れた有機電界発光素子の実現のためには、耐久性のある素子構造を開発する必要がある。

【0012】例えば、有機EL素子のカラーディスプレイへの応用を行う上で、R、G、Bの三原色の安定した発光は必要不可欠な条件であるが、現在の段階では、緑色発光材料以外には、ディスプレイに应用可能な十分な安定性、色度、輝度等を兼ね備えた赤色、及び青色材料についての実用化報告はない。

【0013】新規の青色発光材料の開発については、多くの研究がなされているが、新規物質の開発、研究と共に、既存材料の応用により安定した発光を得ることも重要な課題である。

【0014】クマリン系レーザー色素は、緑色発光の色純度向上のためのドープ材料として応用でき、また、青色発光材料として発光が得られたとの報告も得られてい

る。クマリン系短波長蛍光色素が一般的に単体では結晶性が高く、アモルファスでは安定な青色発光材料として適さなかったのであるが、共蒸着の手法を取ることにによりアモルファス性の安定な薄膜が得られるようになったためと考えられる。

【0015】一般的に有機電界発光素子の寿命は短いため、長寿命化のための研究が各方面で活発に行われている。

【0016】しかし、ディスプレイとして実用化するためには、初期輝度(200カンデラ程度)からの半減時間が一万時間以上であることが好ましいが、このような耐用時間が得られてはいない。これは、有機電界発光素子の実用化に向けて改善すべき課題である。

【0017】本発明の目的は、高発光効率及び高輝度で、長時間安定した発光が可能な素子構造を有する電界発光素子を提供することにある。

【0018】電荷輸送の性能向上のためには、陽極からのホール注入の高効率化をも併せて考慮し、総合的なホール輸送能力を高める必要がある。本発明はホール、電子輸送の性能向上をはかるとともに安定性、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供し、有機電界発光素子のさらなる一層の性能向上を図ることをその課題とする。

【0019】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記のような実状を認識し、既存の材料を応用することにより、素子構造、構成を検討することにより薄膜を効率良く、安定に発光することに着目し、本発明に至った。

【0020】本発明の有機電界発光素子は、陽極上に、ホール輸送層と、発光層と電子輸送層とからなる有機電界発光層と、陰極とが、この順に順次積層された素子の中に、ホールあるいは電子輸送能を向上させるための層を設けるか、又はホールあるいは電子輸送能を向上させる材料をホール輸送層あるいは電子輸送層に含有することを特徴とするものである。電子輸送層は発光層を兼用してもよい。発光層中に、蛍光色素を含有させてもよい。基本的にかかる層構造を採用することにより、高輝度かつ耐久性に優れた有機電界発光素子を得ることができ

る。

【0021】本発明における電荷輸送能を向上させる層は、基本的には蒸着可能な有機化合物で光導電性を有することを特徴とする。

【0022】本発明における電荷輸送能を向上させる層の厚さは、300nm以下であることが望ましい。電荷輸送能を向上させる層は、下限膜厚は、均一な連続膜として形成されれば特に限定されないが、成膜装置における膜厚制御の観点からは1分子層厚以上、実用的には0.5nm以上が望ましい。

【0023】

【発明の実施の形態】以下、本発明を図面を参照しつつさらに詳しく説明する。

10

20

30

40

50

【0024】本発明の請求項1に記載の発明は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられたホール輸送層及び発光層と、前記陽極と前記ホール輸送層の間に電荷輸送能を向上させる電荷輸送向上層とを有する電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0025】請求項2に記載の発明は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に設けられた発光層と、前記陰極と前記発光層の間に電荷輸送能を向上させる電荷輸送向上層とを有する電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0026】請求項3に記載の発明は、電荷輸送向上層がホール輸送能を向上させるホール輸送向上層である請求項1記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0027】請求項4に記載の発明は、電荷輸送向上層が電子輸送能を向上させる電子輸送向上層である請求項2記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0028】請求項5に記載の発明は、ホール輸送層内に電荷輸送を向上させる電荷輸送向上材料を含有することを特徴とする請求項1又は3記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0029】請求項6に記載の発明は、発光層内に電荷輸送を向上させる電荷輸送向上材料を含有することを特徴とする請求項2又は4記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0030】請求項7に記載の発明は、電荷輸送向上層が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項1又は2記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0031】請求項8に記載の発明は、ホール輸送向上層が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項3記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図ら

れて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0032】請求項9に記載の発明は、電子輸送向上層が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項4記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0033】請求項10に記載の発明は、電荷輸送向上材料が光導電体又はテトラシアノキノジメタン化合物もしくはその塩を含む請求項5又は6記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0034】請求項11に記載の発明は、光導電体がフタロシアニン化合物、ペリレン化合物もしくはアゾ化合物、又はそれらの混合物を有することを特徴する請求項7ないし10のいずれか記載の電界発光素子であり、電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0035】以上のように、本発明の有機電界発光素子において、陽極とホール輸送層との間に電荷輸送能を向上させる層を新たに設けると、ITO等透明導電材料からなる陽極と、ホール輸送層との界面における密着性が向上でき、ホール注入効率も向上できる。また、電荷輸送能を向上させる層は、素子発熱時においてITO等の透明導電材料からの酸素や吸着水等のホール輸送層への拡散を防止するバリア層としても機能し、ホール輸送材料の劣化を防止し長寿命化に効果的である。

【0036】また、陰極と電子輸送層あるいは発光層の間に電子輸送能が向上するような層を設けても同様の効果が得られる。さらに、電荷輸送能が向上するような物質をそれぞれホール輸送層や電子輸送層、発光層に共蒸着等により含有してもよい。構成や用いる材料によって、ホール、電子の輸送向上層の両方、あるいは片方が設けられてもよい。これにより、高輝度かつ耐久性に優れた有機電界発光素子を作製することができる。また、低電圧駆動でも安定かつ高輝度の発光が可能になる。電荷輸送を向上させる層の成膜としては真空蒸着法、イオンプレーティング法などが用いることができる。

【0037】陰極は、効率良く電子を注入するために、電極材料の真空準位からの仕事関数の小さい金属を用いるのが好ましく、例えばリチウム、マグネシウム、カルシウム等の低仕事関数の活性な金属と、銀、アルミニウム、インジウム等との合金あるいは積層構造を採用することができる。また、アルミニウム、インジウム、マグネシウム、銀、カルシウム、バリウム、リチウム等の低仕事関数金属を単体で用いることもできる。成膜法は特に限定されず、抵抗加熱等の真空蒸着法、イオンプレーティング法あるいはスパッタリング法等を採用できる。

【0038】ホール輸送層あるいは電子輸送層のいずれかが発光性を有する場合には、発光層をこれらの層で兼用することも可能である。

【0039】ホール輸送層はホール輸送材料単独で、あるいはホール輸送材料を有機高分子等のマトリクス中に均質に分散して形成される。ホール輸送材料としては、TPDや、そのビフェニル骨格を縮合環に置換した化合物、N-イソプロピルカルバゾール等の3級アミン類、ピラゾリン誘導体、スチルベン系化合物、ヒドラゾン系化合物、オキサジアゾール誘導体やフタロシアニン誘導体で代表される複素環化合物、ポリマ系ではこれら単量体を側鎖に有するポリカーボネート誘導体やポリスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾールあるいはポリシラン等が好ましく使用できる。さらには、ベンジジン誘導体、スチリルアミン誘導体、トリフェニルメタン誘導体をはじめ、ボルフィリン誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、アントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、またはポリシラン系化合物、ビニルカルバゾール系化合物、チオフェン系化合物、アニリン系化合物等の複素環式共役系のモノマー、オリゴマー、ポリマー等が挙げられる。

【0040】具体的にはボルフィリン、金属テトラフェニルボルフィリン、金属ナフタロシアニン、4, 4', 4''-トリメチルトリフェニルアミン、N, N, N', N'-テトラキス(p-トリル)p-フェニレンジアミン、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノビフェニル、N-フェニルカルバゾール、4-ジ-p-トリルアミノスチルベン、ポリ(パラフェニレンビニレン)、ポリ(チオフェンビニレン)等が挙げられるがこれに限定されるものではない。

【0041】発光層に用いる発光材料としては、で示される Tris-(8-hydroxyquinoline)-aluminium (以下、Alqと略記する)、ナフタリン、フェナントレン、アクリジン、スチルベンアントラセン、ピレンの他に、ビススチリルアントラセン誘導体、テトラフェニルプタジエン誘導体、クマリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ピロロピリジン誘導体、ベリノン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、オキサジアゾール誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、そしてポリマ系ではポリフェニレンビニレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体等を使用できるが、これらに限定されるものではない。また発光層に添加するドーパントとして、ルブレネン、キナクリドン誘導体、DCM、ベリノン、ベリレン、クマリン等を使用してもよい。また、発光層を電子輸送層に含有させることもできる。

【0042】電子輸送層に用いる電子輸送材料として

は、電子注入効率および電子輸送効率が高い物質であればよく、そのためには電子親和力および電子移動度が大きく、安定性が高く、さらに製造時および発光時に不純物を発生しない材料であることが望ましい。かかる材料としては、Alqが例示されるが、例えばベリレン誘導体、ビススチリル誘導体、ピラジン誘導体等の電子輸送性有機物質を用いてもよい。各材料そのものを積層することにより形成されるが、高分子ポリマ中に分散して積層し、陽極および陰極間に挟持してもよい。

【0043】高分子ポリマとしては、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン等が例示されるがこれらに限定されることはない。抵抗加熱や電子ビーム等による蒸着法、イオンプレーティング法でも形成できる。

【0044】ホールあるいは電子の電荷輸送性能を向上するためには、ホール輸送層と電子輸送層のいずれか一方あるいは両方が、複数種の材料を積層した構造、あるいは複数種の材料を混合した構造であってもよい。微量分子の共蒸着を行ってもよく、例えば、ベリレン誘導体、クマリン誘導体等の有機物質を微量含む有機薄膜であってもよい。また発光性能を向上するために、ホール輸送層、発光層又は電子輸送層のいずれか一つの層あるいは複数の層に、蛍光材料を含有させてもよい。かかる蛍光材料としては特に限定されないが、例えばキナクリドンや下記構造式(4)で示されるDCM(4-ジシアノメチレン-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-2-メチル4H-ピラン)等が例示される。これらの場合には、発光効率をさらに改善するために、ホールまたは電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含ませることも可能である。

【0045】有機電界発光素子に印加する電流は通常直流である。電流値、電圧値は素子破壊しない範囲内であれば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿命を考慮すると、小さい電気エネルギーで効率良く発光させることが望ましい。

【0046】ホールもしくは電子輸送向上層又は物質はフタロシアニン化合物、アゾ化合物、ベリレン化合物などの光導電体に属する物質を含有する層又は物質を用いることができる。これは発光状態又は電圧が印加された状態の方が電荷輸送性が優れている光電効果により電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可能となる。

【0047】また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。フタロシアニン化合物、アゾ化合物、ベリレン化合物などの光電性層に適当に共蒸着等により上記、ホールあるいは電子輸送物質を含有する層によりホール、あるいは電子の輸送の向上が図られる。テトラシアノキノジメタン(TCNQ)あるいはこの塩を含有したホール輸送層、電子輸送層あるいは発光層と兼用とした層をとりいれることにより電荷輸送の向上が図られ、また低電流で高輝度が得られるものが可



能となる。また、層の構成上の安定化も図られて素子の長寿命化の効果も得られた。

【0048】以下、本発明を実施の形態について更に詳細に説明する。

【0049】（実施の形態1）本発明第1の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図1を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず、30mm×30mmのガラスからなる基板1に、例えば膜厚約30nmのITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、SiO<sub>2</sub> 蒸着により5mm×5mmの発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製用のセルを作製した。

【0050】そして、上記の陽極極2の上に、ホール輸送向上層7として鉛フタロシアニンを蒸着速度0.5nm/secで真空蒸着法により真空下で10nmの厚みに蒸着した。

【0051】更に、この層の上に、ホール輸送層3として、 $\alpha$ -NPD ( $\alpha$ -naphthylphenyldiamine) を50nmの厚みに蒸着した。蒸着速度は0.4nm/secとした。

【0052】この層の上に、電子輸送性発光層8としてAlqを20nmの厚みに蒸着し、さらに陰極6としてAl-Li（アルミニウム-リチウム合金：Li濃度約1mol%）を約200nmの厚みに蒸着して、有機EL素子を作製した。

【0053】次に、この実施の形態による有機EL素子について、素子の特性を測定した結果、良好な緑色発光を呈し、輝度は、電流密度100mA/cm<sup>2</sup>において1000cd/m<sup>2</sup>であった。

【0054】十分に実用に耐えることのできる高性能で高輝度の青色発光素子を作製することができた。

【0055】この素子を初期輝度を1000cd/m<sup>2</sup>で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

（実施の形態2）本発明第2の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図2を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、30mm×30mmのガラスからなる基板1に、例えば膜厚約30nmのITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、SiO<sub>2</sub> 蒸着により5mm×5mmの発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製用のセルを作製した。

【0056】そして、陽極2上に、ホール輸送向上材料としての無金属フタロシアニンとホール輸送材としての $\alpha$ -NPD ( $\alpha$ -naphthylphenyl diamine) を真空蒸着法により真空下で例えば50nmの厚みに共蒸着（蒸着速度0.2nm/sec）することにより、ホール輸送向上材料入りのホール輸送層10を形成した。そして、この上に、電子輸送性発光層8としてAlqを例えば30nmの厚みに蒸着し、陰極6としてAl-Li（アルミニウム-リチウム合金）を約200nmの厚みに蒸着（L

i濃度約1mol%）して、有機EL素子を作製した。その素子に電界をかけると良好な緑色発光を呈し、電流密度100mA/cm<sup>2</sup>での輝度は800cd/m<sup>2</sup>であった。

【0057】この素子を初期輝度を1000cd/m<sup>2</sup>で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

【0058】（実施の形態3）本発明第3の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図3を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、30mm×30mmのガラスからなる基板1に、例えば膜厚約30nmのITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、SiO<sub>2</sub> 蒸着により5mm×5mmの発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製用のセルを作製した。

【0059】そして、その陽極2上に、ホール輸送層としてm-MTDATA (4, 4', 4''-tris (3-methylphenylphenylamino) triphenylamine) を真空蒸着法により、真空下で50nmの厚みに蒸着した。

【0060】そして、その上に、電子輸送性発光層8としてAlqを25nmの厚みに蒸着し、その上に電子輸送向上層9としてスズフタロシアニン層を10nmの厚みに蒸着し、陰極6としてAl-Li（アルミニウム-リチウム合金）を約200nmの厚みに蒸着（Li濃度約1mol%）して、有機EL素子を作製した。

【0061】その素子に電界をかけると良好な緑色発光を呈し、電流密度100mA/cm<sup>2</sup>での輝度は700cd/m<sup>2</sup>であった。効率の高い安定した発光を得ることができた。

【0062】この素子を初期輝度を1000cd/m<sup>2</sup>で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

【0063】（実施の形態4）本発明第4の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図4を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、30mm×30mmのガラスからなる基板1に、例えば膜厚約30nmのITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、SiO<sub>2</sub> 蒸着により5mm×5mmの発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製用のセルを作製した。

【0064】そして、陽極2上に、ベリレン顔料を蒸着により30nm膜厚として、ホール輸送向上層7として設けた後、ホール輸送層3としてm-MTDATA (4, 4', 4''-tris (3-methylphenylphenylamino) triphenylamine) を真空蒸着法により、真空下で200nmの厚みに蒸着した。

【0065】次に、この上に、電子輸送性発光層8としてAlqを50nmの厚みに蒸着し、陰極6としてAl-Liを約10nmの厚みに蒸着（Li濃度約1mol%）し、更にこの上にAlを200nm、Auを200

nmの厚さを蒸着して、有機EL素子を作製した。

【0066】その素子に電界をかけると良好な緑色発光を呈し、電流密度 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ における輝度は $7500\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0067】このように、ホール輸送向上層7を設けることにより素子の安定性、寿命に大きな効果があることは明らかであった。

【0068】上記のように作製した本実施の形態の有機EL素子を気温 $20^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $30\%$ 下の大気中で定電流駆動したところ、駆動後1時間での電圧上昇はなく、逆に駆動後10分で駆動電圧は駆動開始直後の7割程度まで低下し、1時間駆動後の駆動電圧は駆動開始直後の7~8割であり、電圧上昇は殆んどなかった。

【0069】このように、ホール輸送向上層を設けることにより素子の安定性、寿命に大きな効果があることは明らかであった。

【0070】この素子を初期輝度を $1000\text{cd}/\text{m}^2$ で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

【0071】(実施の形態5) 本発明第5の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図5を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、 $30\text{mm}\times 30\text{mm}$ のガラスからなる基板1に、例えば膜厚約 $30\text{nm}$ のITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、 $\text{SiO}_2$ 蒸着により $5\text{mm}\times 5\text{mm}$ の発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製のセルを作製した。

【0072】次に陽極2の上に、ホール輸送向上層7としてチタニルフタロシアニンとアゾ顔料を共蒸着した。膜厚 $50\text{nm}$ であった。次にその上に、ホール輸送層3としてm-MTDATA(4, 4', 4''-tris(3-methylphenylphenylamino)triphenylamine)を真空蒸着法により、真空下で $500\text{nm}$ の厚みに蒸着した。

【0073】さらにこの上に、電子輸送性発光層8としてAlq(8-hydroxy quinolinealuminum)を $50\text{nm}$ の厚みに蒸着し、陰極6としてAl-Liを約 $10\text{nm}$ の厚みに蒸着(Li濃度約 $1\text{mol}\%$ )し、更にこの上にAlを $200\text{nm}$ の厚さを蒸着して、有機EL素子を作製した。この素子に電界をかけると良好な緑色発光を呈し、電流密度 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ における輝度は $5000\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0074】この素子を初期輝度を $1000\text{cd}/\text{m}^2$ で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

【0075】(実施の形態6) 本発明第6の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図6を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、 $30\text{mm}\times 30\text{mm}$ のガラスからなる基板1に、例えば膜厚約 $30\text{nm}$ のITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、 $\text{SiO}_2$ 蒸着により $5\text{mm}\times 5$

mmの発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製のセルを作製した。

【0076】次に陽極2の上に、ホール輸送層3としてTPD(N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methylphenyl)-1, 1'-biphenyl-4, 4'-diamine)を真空蒸着法により、真空下で $50\text{nm}$ の厚みに蒸着した。

【0077】次に、この上に、電子輸送性発光層8としてAlq(8-hydroxy quinolinealuminum)を $50\text{nm}$ の厚みに蒸着した。この上の電子輸送向上層9として銅フタロシアニンとTCNQを共蒸着して膜厚 $10\text{nm}$ の層を形成した。その上に陰極6としてAl-Liを約 $10\text{nm}$ の厚みに蒸着(Li濃度約 $1\text{mol}\%$ )し、更にこの上にAlを $200\text{nm}$ 蒸着して、有機EL素子を作製した。この素子に電界をかけると良好な緑色発光を呈し、電流密度 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ における輝度は $5000\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0078】この素子を初期輝度を $1000\text{cd}/\text{m}^2$ で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

【0079】(実施の形態7) 本発明第7の実施の形態による有機EL素子の具体的な構成を図7を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、 $30\text{mm}\times 30\text{mm}$ のガラスからなる基板1に、例えば膜厚約 $30\text{nm}$ のITO透明電極からなる陽極2を設け、この上に、 $\text{SiO}_2$ 蒸着により $5\text{mm}\times 5\text{mm}$ の発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製のセルを作製した。

【0080】次に陽極2の上に、ホール輸送層3としてTPD(N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methylphenyl)-1, 1'-biphenyl-4, 4'-diamine)を真空蒸着法により、真空下で $50\text{nm}$ の厚みに蒸着した。

【0081】次に、この上に、電子輸送性発光材料であるAlq(8-hydroxy quinolinealuminum)と電子輸送向上材料であるTCNQとを共蒸着で形成することにより、電子輸送向上材料入りの電子輸送性発光層11を $50\text{nm}$ の厚さで作製した。その上に陰極6としてAl-Liを約 $10\text{nm}$ の厚みに蒸着(Li濃度約 $1\text{mol}\%$ )し、更にこの上にAlを $200\text{nm}$ を蒸着して、有機EL素子を作製した。この電界をかけると良好な緑色発光を呈し、電流密度 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ における輝度は $6000\text{cd}/\text{m}^2$ であった。

【0082】この素子を初期輝度を $1000\text{cd}/\text{m}^2$ で連続点灯を行って安定性の評価を行った結果、輝度が半になる時間は800時間を越えた。

【0083】(比較例1) 比較のため、電荷輸送向上層のない素子を作製したので、その構成を図8を用いて、その製造方法に基づいて説明する。まず第1の実施の形態と同様に、 $30\text{mm}\times 30\text{mm}$ のガラスからなる



基板 1 に、例えば膜厚約 30 nm の ITO 透明電極からなる陽極 2 を設け、この上に、SiO<sub>2</sub> 蒸着により 5 mm×5 mm の発光領域以外をマスクした有機電界発光素子作製用のセルを作製した。

【0084】次に陽極 2 の上に、ホール輸送層 3 として  $\alpha$ -NPD ( $\alpha$ -naphthyl phenyl diamine) を真空蒸着法により、真空中で 50 nm の厚みに蒸着した。

【0085】次にこの上に、電子輸送層性発光層 8 として Alq を 30 nm の厚みに蒸着し、陰極 6 として Al-Li を約 10 nm の厚みに蒸着 (Li 濃度約 1 mol %) し、更にこの上に Al を 200 nm の厚さを蒸着して、有機 EL 素子を作製した。

【0086】この電界をかけると緑色発光を呈し、電流密度 100 mA/cm<sup>2</sup> における輝度は 1500 cd/m<sup>2</sup> であった。

【0087】また、この素子を初期輝度を 1000 cd/m<sup>2</sup> で連続点灯を行って安定性の評価を行った。時間とともに輝度は徐々に低下し、輝度が半になる時間はほとんどが 500 時間以下であった。

【0088】このように、電荷輸送向上層あるいは電荷輸送を向上させる物資を含有することにより、素子の安定性、寿命に対して大きな効果があることは明らかであった。

【0089】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、本発明によれば、有機電界発光素子における電荷輸送性能が向上し、発光効率が向上して、安定な有機電界発光素子を提供することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明第 1 の実施の形態における電界発光素子の断面図

【図 2】第 2 の実施の形態における電界発光素子の断面図

【図 3】第 3 の実施の形態における電界発光素子の断面図

【図 4】第 4 の実施の形態における電界発光素子の断面図

【図 5】第 5 の実施の形態における電界発光素子の断面図

【図 6】第 6 の実施の形態における電界発光素子の断面図

【図 7】第 7 の実施の形態における電界発光素子の断面図

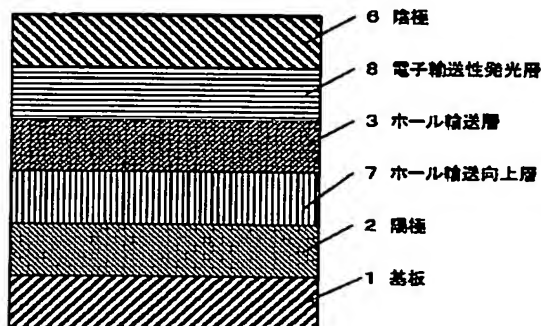
【図 8】比較例における電界発光素子の断面図

【図 9】従来の電界発光素子の断面図

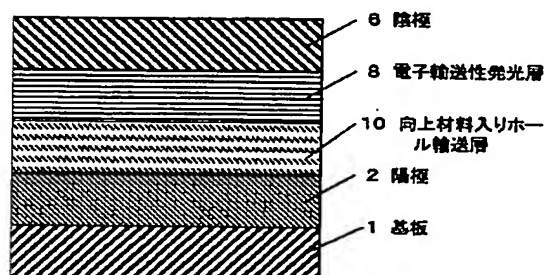
【符号の説明】

- 1 基板 2 陽極
- 3 ホール輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 陰極
- 7 ホール輸送向上層
- 8 電子輸送性発光層
- 9 電子輸送向上層
- 10 向上材料入りホール輸送層
- 11 向上材料入り電子輸送性発光層

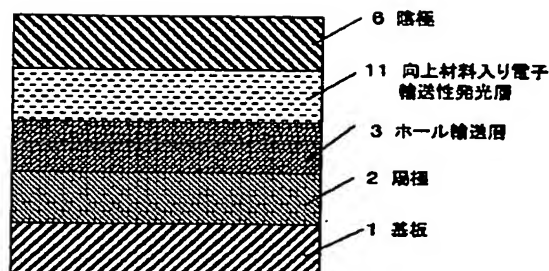
【図 1】



【図 2】



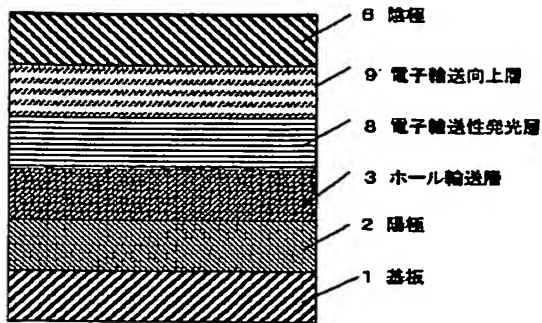
【図 7】



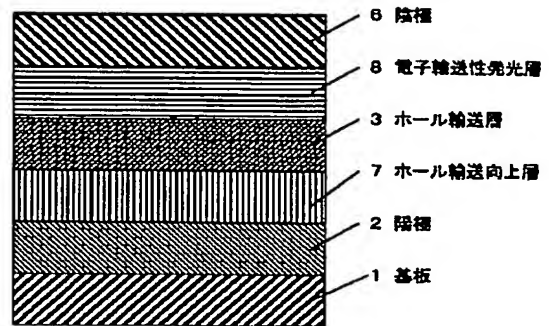
BEST AVAILABLE COPY

BEST AVAILABLE COPY

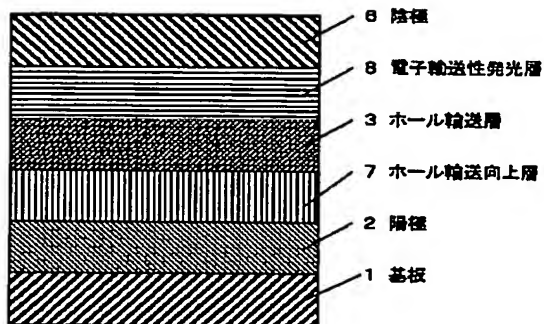
【図 3】



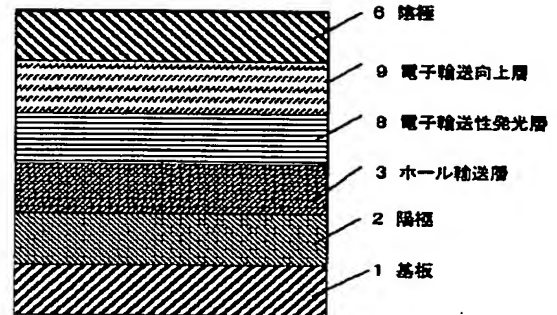
【図 4】



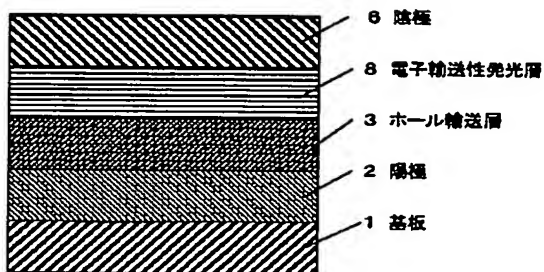
【図 5】



【図 6】



【図 8】



【図 9】

